

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-261967

(43)Date of publication of application : 26.09.2001

(51)Int.Cl.

C08L101/00

C08J 5/00

C08K 3/04

C08K 3/36

C08K 7/18

H01B 1/24

H01M 8/02

(21)Application number : 2000-069958

(71)Applicant : SUMITOMO BAKELITE CO LTD

(22)Date of filing : 14.03.2000

(72)Inventor : FUJII SHUNSUKE  
SUZUKI TAKAYUKI(54) THERMOSETTING RESIN MOLDING MATERIAL AND MOLDED ARTICLE PRODUCED BY  
USING THE MATERIAL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a thermosetting resin molding material having excellent moldability and electrical conductivity, more particularly, to provide a molded article such as a fuel cell separator having excellent processability and good electrical conductivity, mechanical strength and gas barrieriness.

SOLUTION: The objective thermosetting resin molding material contains 10-35 wt.% thermosetting resin (based on the total molding material), 50-85 wt.% graphite and 3-15 wt.% spherical silica having average particle diameter corresponding to  $\leq 1/20$  of that of the graphite.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of  
rejection][Kind of final disposal of application other than  
the examiner's decision of rejection or application  
converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of  
rejection][Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office



(19) 日本国特許庁 ( J P )

(12) 公開特許公報 ( A )

(11) 特許出願公開番号

特開2001-261967

( P 2 0 0 1 - 2 6 1 9 6 7 A )

(43) 公開日 平成13年 9 月 26 日 (2001. 9. 26)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード (参考)
C08L101/00		C08L101/00	4F071
C08J 5/00	CEZ	C08J 5/00	4J002
C08K 3/04		C08K 3/04	5G301
3/36		3/36	5H026
7/18		7/18	

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 4 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-69958 ( P 2000 - 69958 )

(22) 出願日 平成12年 3 月 14 日 (2000. 3. 14)

(71) 出願人 000002141

住友ベークライト株式会社

東京都品川区東品川 2 丁目 5 番 8 号

(72) 発明者 藤井 俊介

東京都品川区東品川 2 丁目 5 番 8 号 住友  
ベークライト株式会社内

(72) 発明者 鈴木 孝之

東京都品川区東品川 2 丁目 5 番 8 号 住友  
ベークライト株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱硬化性樹脂成形材料及びそれを用いた成形体

(57) 【要約】

【課題】 本発明は、成形性及び導電性に優れた熱硬化性樹脂成形材料を提供することを目的とするものである。更に詳しくは、成形性に優れ、導電性、機械的強度、気体不透過性が良好である燃料電池セパレーター等の成形品を提供することを目的とするものである。

【解決手段】 成形材料全体に対して、熱硬化性樹脂 10 ～ 35 重量%、黒鉛 50 ～ 85 重量%及び平均粒子径が黒鉛の平均粒子径の 1 / 20 以下である球状シリカ 3 ～ 15 重量%を含有してなることを特徴とする熱硬化性樹脂成形材料。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 成形材料全体に対して、熱硬化性樹脂10～35重量%、黒鉛50～85重量%及び平均粒子径が黒鉛の平均粒子径の1/20以下である球状シリカ3～15重量%を含有してなることを特徴とする熱硬化性樹脂成形材料。

【請求項2】 請求項1記載の成形材料を成形してなり、成形体の厚みが0.5～5.0mmであることを特徴とする導電性成形体。

【請求項3】 燃料電池セパレーター用である請求項1記載の熱硬化性樹脂成形材料。

【請求項4】 請求項3記載の成形材料を成形してなる燃料電池セパレーター。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、熱硬化性樹脂に黒鉛とともに粒径の小さい球状シリカを混合してなる、成形性に優れた高導電性の熱硬化性樹脂成形材料及びその成形体に関するものである。この成形材料は水素、アルコール等を燃料とする燃料電池のセパレーター等に好適なものである。

## 【0002】

【従来の技術】燃料電池のセパレーターは大型で薄肉の成形品であり、従来この種の材料としては黒鉛粉末に熱硬化性樹脂等の結合剤を加え、混練、成形、焼成し、さらに気体透過性、導電性を向上させるため前記結合剤を含浸し、高温焼成したあと、切削加工して必要形状を得ていた。このような炭素素材に2次加工を施す方法は高温焼成しているため耐熱性が良好である利点はあるが、その反面気孔が生じやすく、液状の熱硬化性樹脂等を含浸する工程が必要となり、また切削加工工程が必須条件であるため加工費が高くなる。

【0003】更に黒鉛粉末、熱硬化性樹脂、機械的強度の補強材等を混練し、その成形体を製品とする方法も提案されている。このように結合材として樹脂を用いる方法では前記炭素素材に2次加工を施す方法に比べ加工費を大幅に低減できるが、成形体の導電性が劣るという欠点がある。そのため黒鉛粒度・形状を最適化することにより黒鉛粉末の充填量を増やし、この成形体の導電性を高める手法がとられている。しかし、黒鉛粒度・形状を調整するために、黒鉛の粉碎、分級が必要となり工程が複雑になるだけでなく、黒鉛粉末充填量の増加は成形材料の流動性を低下させるため、燃料電池のセパレーターのような大型かつ薄肉で複雑な形状を有した成形体を得ることは難しくなる。従って、揮発性有機溶媒を混和し材料をペースト化したり、樹脂の粘度、不揮発分を調整したりして成形体を得る手法がとられている。これらの手法は効果的ではあるが、成形体の硬化時に気泡が生じたり、硬化不足により形状保持が困難になったりするため、予熱工程や硬化時間の延長が必要になり、成形加工

性、生産性が悪い。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記のような欠点を改良するものであり、成形性及び導電性に優れた熱硬化性樹脂成形材料を提供することを目的とするものである。更には、成形性に優れていることから、導電性が良好である燃料電池のセパレーター等の成形品を提供することを目的とするものである。具体例として燃料電池のセパレーターでは、導電性を示す体積抵抗率が $10^{-3} \sim 10^{-1} \Omega \cdot \text{cm}$ であり、複雑な形状を有す大型で薄肉な成形体を良好に得ることを目的とするものである。

## 【0005】

【課題を解決する手段】本発明は、上記目的を達成すべく鋭意検討を行った結果、完成されたものであり、成形材料全体に対して、熱硬化性樹脂10～35重量%、黒鉛50～85重量%及び平均粒子径が黒鉛の平均粒子径の1/20以下である球状シリカ3～15重量%を含有してなることを特徴とする熱硬化性樹脂成形材料に関するものであり、成形時の流動性に優れていることから、成形性に優れた高導電性の熱硬化性樹脂成形材料に関するものである。

【0006】以下、本発明について詳細に説明する。本発明において、球状シリカは黒鉛の平均粒子径に対して1/20以下の平均粒子径であることを必要とする。黒鉛粒子は通常アスペクト比（長径と短径の比）を持ち、この異方性が黒鉛の流動を妨げ成形材料の成形性を阻害する要因の一つとなっているが、上記範囲の平均粒子径である球状シリカが存在すると、成形材料が熔融し流動するとき、黒鉛粒子は球状シリカを支点とし球状シリカの流動に併せて滑るため、黒鉛粒子間の摩擦を押さえ、黒鉛の流動を円滑にするため成形時の成形材料の流動性が向上する。一方、成形後においては球状シリカは黒鉛粒子間に形成される空隙に存在し、粒子間の接触面での導電性を下げることがない。また、黒鉛のモース硬度

(1～3)が球状シリカ(モース硬度5～8)に比べて低く、球状シリカの粒径が小さいため、球状シリカが黒鉛粒子間の接触面に存在しても、黒鉛表面に埋没し黒鉛粒子間の接触を阻害しないため導電性を著しく妨げることとはない。球状シリカの平均粒子径が黒鉛の平均粒子径に対して1/20より大きいと黒鉛表面に球状シリカが完全に埋没せず、また黒鉛粒子間の空隙に収まらず黒鉛同士の接触を阻害するため導電性の維持が困難になる。

【0007】組成物中の各成分の割合は、熱硬化性樹脂10～35重量%、黒鉛50～85重量%及び球状シリカ3～15重量%である。熱硬化性樹脂が10重量%未満であると、流動性が低下するため成形加工性が厳しくなり、35重量%を超えると実用的な導電性を得られない。黒鉛が50重量%未満では導電性に乏しく、85重量%を超えると流動性が低下するため成形加工性に難点

が生じる。また、球状シリカが3重量%未満では導電性に影響は無いが流動性の向上に乏しく成形加工性が改善されない。15重量%を超えると黒鉛もしくは樹脂の配合量が押さえられ、実用レベルの導電性と成形加工性が維持できない。本発明においては、 $10^{-3} \sim 10^{-1} \Omega \cdot \text{cm}$ の高伝導性と優れた成形加工性を得るために、黒鉛と球状シリカとの合計配合量が成形材料全体の70～95重量%の範囲であることが好ましい。

【0008】本発明で使用する黒鉛としては特に限定されない。例えば鱗片状、塊状、土状等の天然黒鉛や人造黒鉛が使用できる。黒鉛の平均粒径は成形材料に必要な性能に併せて選択可能であるが、通常10～400 $\mu\text{m}$ のものが使用できる。球状シリカとしては黒鉛の平均粒子径に対して1/20以下の平均粒子径であれば使用可能であるが、効果的に成形時の成形材料の流動性を向上させ、且つ導電性を維持するために通常0.01～20 $\mu\text{m}$ のものが使用できる。

【0009】本発明で使用する熱硬化性樹脂としては、常温で固体であるものが使用できる。液状である、例えば加圧ロールでの混練性が著しく低下し、均一な分散が得られない。例えばフェノール樹脂、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂等が用いられる。特に耐熱性のよいフェノール樹脂、エポキシ樹脂が好ましく、フェノール樹脂では、成形時にアンモニアが発生せず成形品中に残存しないという点でレゾール型フェノール樹脂が好ましい。

【0010】次に、本発明の熱硬化性樹脂成形材料を製造する方法について、その一例を詳しく説明すると、黒鉛、球状シリカ、微粉碎した熱硬化性樹脂、及び離型剤をヘンシェルミキサーにて均一に混合する。この混合組

成物は、更に均一な導電性と実用的な機械的強度、気体不透過性を付与すると同時に成形加工性を高めるために加熱ロールで成形材料化し破砕する。必要により顆粒状にすることもできる。導電性、成形加工性を損なわない範囲で、黒鉛の代わりにカーボンブラック、炭素繊維等の導電性の充填材を一部使用することも可能であり、シリカ以外の無機充填材も一部併用使用することができる。

【0011】このようにして得られた熱硬化性樹脂成形材料は通常の熱硬化性樹脂の成形機で成形でき、例えば、金型温度130～200℃、成形圧力200～800 $\text{kg}/\text{cm}^2$ 、硬化時間5分の条件で、220×220×2mmの溝付き成形品を得ることができる。

【0012】

【実施例】以下本発明を実施例により詳しく説明する。しかし本発明はこれらの実施例によって限定されるものではない。また、実施例及び比較例に記載されている「部」及び「%」は、すべて「重量部」及び「重量%」を示す。

【0013】実施例1、2、比較例1～3

表1に示した人造黒鉛と球状シリカ、離型剤としてステアリン酸及びフェノール樹脂としてジメチレンエーテル型レゾールフェノール樹脂（数平均分子量700、融点80℃）をヘンシェルミキサーにて混合して組成物を得た。得られた組成物を80℃の加熱ロールで熔融混練した後取り出し、顆粒状に粉碎してフェノール成形材料を得た。この成形材料を金型温度170℃、成形圧力200 $\text{kg}/\text{cm}^2$ 、硬化時間3分で圧縮成形し220×220×2mmの大きさの溝付き成形品を得た。得られた成形品の特性を表1下段に示す。

【0014】

【表1】

	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3
黒鉛平均粒子径 ( $\mu\text{m}$ )	120	60	30	120	120
球状シリカ平均粒子径 ( $\mu\text{m}$ )	1	1	2	1	-
シリカ形態	溶融球状	溶融球状	溶融球状	溶融球状	-
フェノール樹脂 (%)	15	15	15	5	15
黒鉛添加量 (%)	75	70	70	65	80
球状シリカ添加量 (%)	5	10	10	25	0
体積固有抵抗 ( $\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ )	10	15	50	110	10
試験片の成形性	○	○	○	×	△

【0015】（測定方法）

体積固有抵抗：JIS K 7194により測定した。  
成形性：充填性及び外観が良好なものを○、外観にフクレ・溝凸部の割れが生じるものを△、未充填部やフクレ、溝凸部の割れがあるものを×とした。

【0016】

【発明の効果】以上の説明から明らかなように、本発明

の熱硬化性樹脂成形材料は、成形加工性に優れた高導電性の熱硬化性樹脂成形材料であり、複雑な形状を有する薄肉の成形体を得ることができる。従って、水素、アルコール等を燃料とする燃料電池のセパレーター等の成形品を容易に製造することが出来るため、工業的な導電性樹脂成形材料として好適である。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>

識別記号

F I

テーマコード (参考)

H01B 1/24

H01B 1/24

Z

H01M 8/02

H01M 8/02

Y

Fターム(参考) 4F071 AA41 AA42 AA49 AB03 AB26  
AD02 AD06 AH15 BB03 BC12  
4J002 CC031 CD001 CF211 DA026  
DJ017 FA087 GQ01  
5G301 DA19 DA42 DA55 DD08  
5H026 AA02 BB02 CC03 CX04 EE05  
EE06 EE12 HH01 HH03 HH05